

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年9月27日 (27.09.2001)

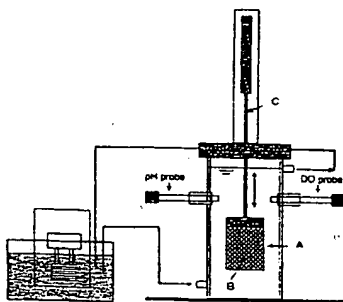
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/70637 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C02F 3/34, 3/10, 3/08
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/02362
- (22) 国際出願日: 2001年3月23日 (23.03.2001)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2000-85416 2000年3月24日 (24.03.2000) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 科学技術振興事業団 (JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY CORPORATION) [JP/JP]; 〒332-0012 埼玉県川口市本町4丁目1番8号 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 弁理士 西澤利夫 (NISHIZAWA, Toshio); 〒150-0042 東京都渋谷区宇田川町37-10 麻仁ビル6階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松村正利 (MATSUMURA, Masatoshi) [JP/JP]; 〒300-2642 茨城県つく
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: METHOD FOR DIRECT CLARIFICATION OF GROUND WATER POLLUTED WITH NITRATE

(54) 発明の名称: 硝酸汚染地下水の直接浄化方法



(57) Abstract: A method for direct clarification of a ground water polluted with nitrates, which comprises providing a biodegradable plastic derived from starch and usable both as a single carbon source and as a carrier for immobilizing bacterial bodies, immobilizing denitrifying bacteria on the carrier, and contacting the resulting immobilized bacteria with a ground water polluted with nitrate nitrogen; and an apparatus for practicing the method. The method allows the use of a carbon source with high efficiency and the densification of denitrifying bacteria, and thus can be used for clarifying a ground water directly with high safety, with no need for the addition of a heavy metal.

(57) 要約:

効率的な炭素源の利用と脱窒菌の高濃度化を図ることができ、重金属の添加を必要とすることもなく、より安全性の高い地下水の直接浄化を可能とする新しい浄化方法とそのための装置として、澱粉由来の生分解性プラスチックを単一炭素源並びに菌体固定化担体とし、この担体に脱窒菌を固定化して硝酸態窒素に汚染された地下水と接触させる。

WO 01/70637 A1

## 明 細 書

### 硝酸汚染地下水の直接浄化方法

#### 技術分野

この出願の発明は、硝酸汚染地下水の直接浄化方法とその装置に関するものである。さらに詳しくは、この出願の発明は、硝酸態の窒素で汚染された飲用および灌漑用等の地下水の効率的で、安全かつ安価な直接的浄化方法に関するものである。

#### 背景技術

生物学的脱窒においては、電子供与態となる炭素源が必須であることから、従来の硝酸汚染、すなわち硝酸態窒素により汚染された地下水の直接浄化には、脱窒菌と水溶性の炭素源を別々に地下水に投入する方法が用いられてきた。しかしながらこのような従来の方法では、脱窒菌と水溶性の炭素源は容易に地下水脈中に拡散し、十分に効果を発揮することができないという問題があった。

また、飲用を目的とした脱窒においては、用いる炭素源は、メタノール等のように毒性が危惧されるものを避けなければならない、選択される炭素源も制約されてしまうという問題があった。

さらにまた、脱窒代謝過程に関与する酵素の多くが金属酵素であることから、従来、脱窒菌の能力を十分発揮させるには、Fe、Mo、Mn、Cuなどの重金属の微量添加が必要とされてきた。しかし、地下水の金属含有量は様々であり、一般的に金属含有量の高いものは飲用には利用されないという問題もある。

そこで、この出願の発明は、以上のとおりの従来技術の問題点を解消し、効率的な炭素源の利用と脱窒菌の高濃度化を図ることがで

き、重金属の添加を必要とせず、より安全性の高い地下水の直接浄化を可能とする新しい浄化方法とそのための装置を提供することを課題としている。

#### 発明の開示

この出願の発明は、上記のとおり課題を解決するものとして、まず第1には、澱粉由来の生分解性プラスチックを単一炭素源並びに菌体固定化担体とし、この担体に脱窒菌を固定化して硝酸態窒素に汚染された地下水と接触させることを特徴とする硝酸汚染地下水の直接浄化方法を提供する。

また、この出願の発明は、第2には澱粉由来の生分解性プラスチックの澱粉含有量が60重量%以上である前記の直接浄化方法を、第3には、澱粉由来の生分解性プラスチックが多孔質である前記の直接浄化方法を、そして第4には、澱粉由来の生分解性プラスチックの気孔率が10%以上である前記の直接浄化方法をそれぞれ提供する。

さらに、この出願の発明は、第5には、澱粉由来の生分解性プラスチックが水に対する溶解性の低いものであること、および第6には、澱粉由来の生分解性プラスチックが、廃棄物の再利用品であることを前記直接浄化方法の態様として提供する。

第7には、この出願の発明は、脱窒菌が、重金属を要求せず、亜硝酸を蓄積することなく20℃以下の低い温度で脱窒能を示すものである前記の直接浄化方法を提供する。

そして、この出願の発明は第8には、前記の菌体固定化担体を網ケースに充填し、これを上下方向に揺動させて水との接触を図るようにした直接浄化方法を提供し、第9には、この直接浄化方法のた

めの装置として、少なくとも担体を収納充填する網ケースとともに、これを地下水との接触時に上下方向に揺動させる揺動手段を備えていることを特徴とする硝酸汚染地下水の直接浄化装置をも提供する。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、この発明の装置構成の一例を示した概要図である。

また、図 2 は、実施例としての脱窒処理の結果を例示した図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

この出願の発明は、上記のとおりの特徴をもつものであるが、以下にその実施の形態について説明する。

なによりもこの出願の発明が特徴とすることは、澱粉を単一の炭素源として生育できる脱窒菌を安価な澱粉由来生分解性プラスチックに固定化して硝酸態窒素汚染地下水の直接浄化を行うことである。

この直接浄化方法では、脱窒菌が常に炭素源と共に存在することから効率的な炭素源の利用と、脱窒菌の高濃度化が図れる。また、澱粉にはメタノールを炭素源とする場合のような毒性の危惧はなく、またこれを資化する微生物も多数おり、有用な脱窒菌を分離するのに有利である。

澱粉由来の生分解性プラスチックは、澱粉含有量が 60 重量%以上、たとえば 70 重量%前後で、水に対する溶解性が低く、かつ多孔質であるものが好適に用いられる。これらの特性は、多数の脱窒菌を固定化し、比較的長期間にわたる処理を可能とするのに重要な要因である。

好適な澱粉由来の生分解性プラスチックについてその物性値を例

示すると、たとえば比重 1.01 ~ 1.05 で、懸濁が容易なもの、そして気孔率は 10 ~ 60 % のものが挙げられる。また、澱粉の原料については、馬鈴薯、サツマイモ、小麦、トウモロコシ等の各種のものであってよい。さらに、メチルアクリレート等の不飽和結合を有し、重合性の良好なモノマーによりグラフト重合した澱粉もこの出願の発明において好適に用いられる。

澱粉由来の生分解性プラスチックとしては、たとえば澱粉を乳酸ポリマーとの複合化や共重合化したもの、あるいはシクロデキストリン等により架橋（重合）処理したもの、その他の各種の天然物ポリマーとの複合化により成形したもの等の各種のものが用いられる。ただ、菌体固定化担体としてだけでなく、単一の炭素源としても使用することから、生分解性プラスチックに占める澱粉もしくは澱粉のブロックの割合は 60 重量%以上とすることが好ましい。また、菌体をより大量に固定化させ、水との接触面積を大きくする観点から、生分解性プラスチックは多孔質のもの、より好ましくは気孔率が 10 % 以上、さらには 15 ~ 45 % 程度のものとするのが好ましい。

また、澱粉由来生分解性プラスチックとしては、パッキング材等として実際に利用されている使い捨て物質、つまり廃棄物の再用品を用いることもできる。この場合にはこの発明の直接浄化方法は、極めて安価なものとなる。そして、廃棄物の有効利用という観点からも意義がある。

たとえば以上のような生分解性プラスチックを担体とするこの発明の方法においては、この担体に脱窒菌を固定化する。菌の固定化は、たとえば菌体懸濁液に乾燥した担体を投入するだけでよく、担体の細孔内に菌体が吸引され容易に定着することになる。この場合

の脱窒菌としては、*Pseudomonas* 属、*Janthinobacterium* 属、*Zoogloea* 属、*Alcaligenes* 属、*Nitrobacter* 属、*Nitrosomonas* 属、*Klebsiella* 属等のものから各種の脱窒菌を選択できる。具体的には、*Pseudomonas aeruginosa*、*Pseudomonas stutzeri*、*Pseudomonas mephitica*、*Janthinobacterium lividum*、*Zoogloea sp.*、*Alcaligenes denitrificans*、*Paracoccus denitrificans* 等が例示される。好ましくは、重金属を添加することなく脱窒能を発揮する菌とする。また、井戸水は 15℃ 前後であることから、一般的には 20℃ 以下の低温下での増殖および脱窒能力を有するものが望ましい。

前記の脱窒菌の選択においては、例えば実施例にも例示したように、Giltay-Starch 培地に移植し、ガスの発生が認められるものを脱窒のあるものとして判定することができる。また、重金属による影響についても容易に判定することができる。

この出願の発明の方法を用いて、二次汚染を引き起こすことなく、澱粉由来生分解性プラスチックに固定化した上記の菌体を地下水脈中に投入して直接浄化を図る場合、よりその効果を発揮するためには水脈中に相当大量の固定化菌体を投入することが望ましい。したがって、この発明では、硝酸汚染地下水を井戸の中で浄化するための装置をも提供する。

このような装置では、脱窒菌の活性化に伴って多くの窒素ガスが発生し、これが担体に付着して担体を浮上させることから、担体と水との接触が悪くなり、処理効率の低下が起こるとの問題が予測できる。したがって、この発明の装置では、そのような問題の発生を未然に防止するために、物理的強度が少なく脆弱な担体を破砕することなく、狭い井戸の中で担体を水中に分散させる。このため、たとえば具体的には図 1 に例示したように、円筒状の網籠（A）の中

に籠容積の60～70%の固定化担体（B）を充填し、これをエアー・シリンダー（C）等の上下方向の揺動手段で鉛直方向に運動させるようにする。その際、たとえば下降させる場合には比較的ゆっくりと移動させ、上昇させる場合には素早く移動させる。このような籠の動きによって内部の担体は、浮力によって水中を上昇して水との良好な接触が保たれる。脱窒の進行に伴って担体が消耗し、この補充が必要となることから、担体を充填した籠はカートリッジ式とするとよい。また、交換時には古いカートリッジの中の担体を新規カートリッジの中に混入させることができる。この操作によって、古い担体に付着していた脱窒菌が新たに担体に移行して再び脱窒を行うことができる。

そこで、以下に実施例を示し、さらに詳しくはこの発明の方法について説明する。もちろんこの発明は以下の実施例によって限定されるものではない。

#### 実施例

##### <脱窒菌1>

湖沼の底泥を分離源として、脱窒菌株を分離した。菌の分離源は水戸市千波湖の底泥である。分離方法は以下のとおりである。

すなわち、十分希釈した底泥懸濁液を、増殖寒天プレートに塗布し、4℃で3～4週間培養し、発生したコロニーを可溶性澱粉を含む寒天プレート（ペプトン、酵母エキス含有）に移植して、4℃で3～4週間培養した。発生したコロニーによる澱粉分解は、ヨウ素-ヨウ化カリ溶液をプレート上に注入して、コロニー周辺に黒青色が現れないことによって確認した。澱粉分解性が確認されたコロニーは、再度ペプトン、酵母エキスを含まない澱粉含有寒天培地に移

植し、澱粉だけが単一の炭素源である栄養分の少ない最小培地での増殖を確認した。

この試験を通過した25菌株について脱窒能の有無を検討した。Giltay-Starch 培地20mlを含む試験管にコロニーを移植し、10日間培養した。培地のグリーン色が青色に変化し、ガスの発生が認められるものを脱窒能ありと判定し、脱窒能の高い株を取得した。

分離菌株の16SrRNAによる解析をおこなったところ、BLAST Search Dataに基づき高い相同性(98.12%)で *Zoogloea* sp. と判定された。

さらに、この菌は、15℃の低温下、重金属無添加のもとで、亜硝酸を蓄積することなく350ppmの高濃度硝酸を窒素ガスに変換した。また、この菌は、重金属の添加と30℃の温度では脱窒能が阻害されるという特性をも有していた。

#### <脱窒菌2>

前記の脱窒菌1の場合と同様の判定方法により、*Pseudomonas* 属より *Pseudomonas mephitica* として、脱窒能が高く、重金属を要求せずに亜硝酸を蓄積することなく20℃以下の温度で脱窒能を示す脱窒菌を選択した。

#### <脱窒菌3>

脱窒菌2と同様の方法により *Janthinobacterium* 属より *Janthinobacterium lividum* として脱窒菌を選択した。

#### <直接浄化>

実験室内の模擬井戸における脱窒処理を、図1の構成の装置を用いて行った。

ステンレス製の網籠(basket)(A)の容積は、リアクター容積の20%とした。この網籠(A)には、前記の菌体を固定化した担体(B)を充填した。



担体および炭素源として、バック材として実用化されている澱粉由来の多孔質の生分解性プラスチック(澱粉含有量72重量%)の廃棄物を再利用した。

このものは、比重が1.03で、気孔率は20%である。この担体を、前記の菌体の懸濁液に投入して菌の固定化を行った。

図2は、脱窒処理の繰り返し回分法による試験の結果を経時的に示したものである。図中の矢印は、新たな硝酸ナトリウムが投入されたことを意味している。 $\text{NO}_3$ 態の窒素と、 $\text{NO}_2$ 態の窒素の変化を示した。

この図2において、17日目に添加した後は(17~23日)、硝酸の減少が起きていないが、これは実験開始時に添加した澱粉担体が全て消費され尽くしたためである。23日目に新たな澱粉担体を投入したところ、脱窒が再開された。

さらに、この図2に示したように、15℃の低温下で170ppmの硝酸態窒素を4~5日で、亜硝酸を蓄積することなく完全に除去できることが確認された。また、消耗した担体を補充することによって長期間脱窒処理が可能であることが示された。

脱窒菌2および3の場合にも、15℃の低温下で、各々40ppm、150ppmの硝酸態窒素を4~5日で、亜硝酸を蓄積することなく完全に除去できることが確認され、上記とほぼ同様の結果が得られた。

#### 産業上の利用可能性

以上詳しく説明したとおり、この出願の発明においては、澱粉を単一の炭素源として生育できる脱窒菌を安価な澱粉由来生分解性プラスチックに固定化して硝酸態窒素汚染地下水の直接浄化を行うこ

とから、脱窒菌が常に炭素源と共に存在し、効率的な炭素源の利用と脱窒菌の高濃度化が図れる。澱粉にはメタノールを炭素源とする場合のような毒性の危惧はない。

したがって、この出願の発明によって、効率的に、しかも毒性への懸念もなく、安価に硝酸汚染地下水を直接浄化することが可能となる。

## 請求の範囲

1. 澱粉由来の生分解性プラスチックを単一炭素源並びに菌体固定担体とし、この担体に脱窒菌を固定化して硝酸態窒素に汚染された地下水と接触させることを特徴とする硝酸汚染地下水の直接浄化方法。
2. 澱粉由来の生分解性プラスチックは、澱粉含有量が60重量%以上である請求項1の直接浄化方法。
3. 澱粉由来の生分解性プラスチックは、多孔質である請求項1または2の直接浄化方法。
4. 澱粉由来の生分解性プラスチックは、気孔率が10%以上である請求項3の直接浄化方法。
5. 澱粉由来の生分解性プラスチックは、水に対する溶解性が低いものである請求項1ないし4のいずれかの直接浄化方法。
6. 澱粉由来の生分解性プラスチックは、廃棄物の再利用品である請求項1ないし5のいずれかの直接浄化方法。
7. 脱窒菌は、重金属を要求せず、亜硝酸を蓄積することなく、20℃以下の低い温度で脱窒能を示すものである請求項1ないし6のいずれかの直接浄化方法。
8. 担体を網ケースに充填し、これを上下方向に揺動させて水との接触を図る請求項1ないし7のいずれかの直接浄化方法。
9. 請求項8の直接浄化方法のための装置であって、担体を収納充填する網ケースとともに、これを地下水との接触状態において上下方向に揺動させる揺動手段を備えていることを特徴とする硝酸汚染地下水の直接浄化装置。

図 1

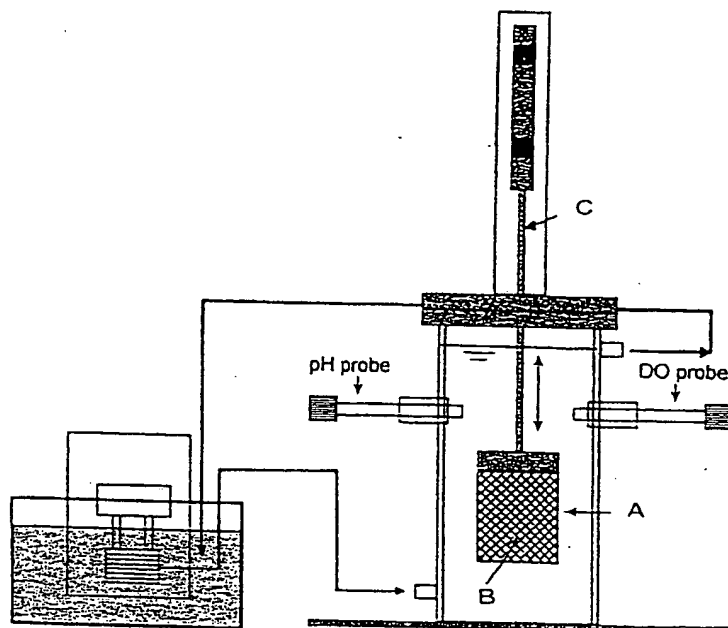
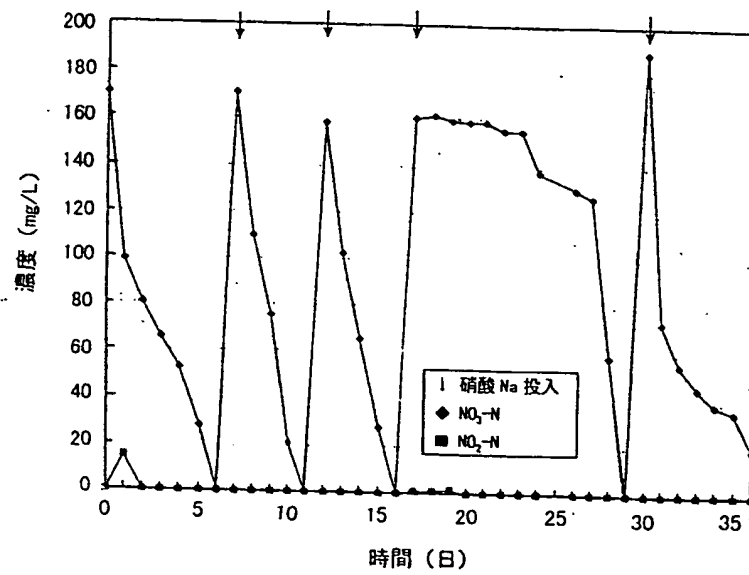


図 2



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/02362

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C02F3/34, C02F3/10, C02F3/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C02F3/00-3/34

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 10-85782, A (Susumu MARUYAMA), 07 April, 1998 (07.04.98), Claims; Par. Nos. [0001], [0011], [0026] to [0028], [0034] to [0036], [0063] (Family: none)	1-9
Y	DE, 2607114, A (Euroc Administration AB), 09 September, 1976 (09.09.76), pages 8 to 10 & JP, 51-110856, A Claims & NL, 7602004, A & FR, 2302279, A & DK, 7600818, A & DD, 124968, A & SE, 7601747, A & CS, 7601267, A & CA, 1072691, A	1-9
Y	JP, 6-31296, A (Kubota Corporation), 08 February, 1994 (08.02.94), Claims; Par. No. [0014]; Fig. 3 (Family: none)	8, 9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
05 June, 2001 (05.06.01)Date of mailing of the international search report  
12 June, 2001 (12.06.01)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/02362

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 10-165733, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 23 June, 1998 (23.06.98), Claims; Par. Nos. [0003] to [0005] (Family: none)	1-9
A	JP, 8-323381, A (Hitachi Plant Eng. & Constr. Co., Ltd.), 10 December, 1996 (10.12.96), Claims; Par. Nos. [0005] to [0007], [0013], [0016], [0017] (Family: none)	1-9
A	JP, 11-90471, A (Sekisui Plastics Co., Ltd.), 06 April, 1999 (06.04.99), Claims 1, 4; Par. No. [0008] (Family: none)	6
A	JP, 8-267081, A (Onoki Furotsuku Kogyo K.K.), 15 October, 1996 (15.10.96), Claims; Par. No. [0005] (Family: none)	6

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP01/02362

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>1</sup> C02F3/34, C02F3/10, C02F3/08

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>1</sup> C02F3/00-3/34

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2001年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 10-85782, A, (丸山進), 7.4月. 1998(07.04.98), 特許請求の範囲, 段落0001, 0011, 0026-0028, 0034-0036, 0063, (ファミリーなし)	1-9
Y <sup>2</sup>	DE, 2607114, A, (EUROC ADMINISTRATION AB) 9.9月. 1976(09.09.76), 第8-10頁, & JP, 51-110856, A, 特許請求の範囲, & NL, 7602004, A & FR, 2302279, A & DK, 7600818, A & DD, 124968, A & SE, 7601747, A & CS, 7601267, A & CA, 1072691, A	1-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

05.06.01

## 国際調査報告の発送日

12.06.01

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号 100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官 (権限のある職員)

目代 博茂



4D 9630

電話番号 03-3581-1101 内線 3419



C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 6-31296, A, (株式会社クボタ), 8. 2月. 1994 (08. 02. 94), 特許請求の範囲, 0014, 図3, (ファミリーなし)	8, 9
A	JP, 10-165733, A, (松下電器産業株式会社), 23. 6月. 1998 (23. 06. 98), 特許請求の範囲, 0003-0005, (ファミリーなし)	1-9
A	JP, 8-323381, A, (日立プラント建設株式会社), 10. 12月. 1996 (10. 12. 96), 特許請求の範囲, 段落0005-0007, 0013, 0016, 0017, (ファミリーなし)	1-9
A	JP, 11-90471, A, (積水化成品工業株式会社), 6. 4月. 1999 (06. 04. 99), 請求項1, 請求項4, 0008, (ファミリーなし)	6
A	JP, 8-267081, A, (小野木ブロック工業有限会社), 15. 10月. 1996 (15. 10. 96), 特許請求の範囲, 0005, (ファミリーなし)	6